

# **Halogenidionok és céziunion szorpciója és migrációja háromértékű kationcserélt bentonitban**

*OTDK dolgozat*

Készítette:

Molnár Ákos Máté

III. Környezettan BSc hallgató

Témavezetők:

Prof. Dr. M. Nagy Noémi egyetemi tanár

Prof. Dr. Kónya József egyetemi tanár

Debreceni Egyetem,

Természettudományi és Technológiai Kar,

Kolloid- és Környezetkémiai Tanszék,

Imre Lajos Izotóplaboratórium

Debrecen

Lezárás dátuma:

2014. november 28.

## Tartalomjegyzék

|                                                                           |    |
|---------------------------------------------------------------------------|----|
| 1. Bevezetés és célkitűzés.....                                           | 3  |
| 2. Irodalmi áttekintés .....                                              | 5  |
| 2.1. Agyagásványok .....                                                  | 5  |
| 2.2. Montmorillonit, Bentonit.....                                        | 6  |
| 2.3. Istenmezeje .....                                                    | 8  |
| 2.4. Röntgenfluoreszcencia analízis .....                                 | 9  |
| 2.5. Folyadékszcintillációs spektrometria .....                           | 10 |
| 2.6. Gamma spektrometria .....                                            | 11 |
| 2.7. A radioaktív izotópok előfordulása a környezetben .....              | 12 |
| 2.7.1. Radioaktív anyagok előfordulása az atmoszférában.....              | 12 |
| 2.7.2. Radioaktív izotópok a hidroszférában .....                         | 15 |
| 2.7.3. Radioaktív izotópok a pedoszférában .....                          | 16 |
| 2.8. A radioaktív hulladékok .....                                        | 20 |
| 2.9. Radioaktív izotópok migrációja .....                                 | 20 |
| 2.10. A vizsgált izotópok keletkezése .....                               | 21 |
| 2.10.1. Kloridion ( $^{36}\text{Cl}$ ).....                               | 21 |
| 2.10.2. Jodidion ( $^{131}\text{I}$ ).....                                | 21 |
| 2.10.3. Céziumion ( $^{137}\text{Cs}$ ).....                              | 21 |
| 3. Kísérleti rész .....                                                   | 22 |
| 3.1. A felhasznált kalcium(II)-bentonit jellemzése .....                  | 22 |
| 3.2. A felhasznált vas(III)-bentonit készítése .....                      | 22 |
| 3.3. Az $\text{Y}^{3+}$ és a $\text{Yb}^{3+}$ -bentonitok készítése ..... | 22 |
| 3.4. A kísérlet előkészítése .....                                        | 23 |
| 3.5. A kísérlet menete .....                                              | 24 |
| 3.6. A szorpciós vizsgálat .....                                          | 24 |
| 4. Kísérleti eredmények és értékelésük .....                              | 26 |
| 4.1. A szorpciós vizsgálatok eredménye .....                              | 26 |
| 4.2. A látszólagos migrációs együttható meghatározásának elve.....        | 27 |
| 4.3. A mintavételes és szeleteléses módszerek összehasonlítása II.....    | 28 |
| 5. Összefoglalás .....                                                    | 30 |
| 6. Summary.....                                                           | 31 |
| 7. Irodalomjegyzék .....                                                  | 32 |
| I. Függelék.....                                                          | 34 |

## 1. Bevezetés és célkitűzés

Napjainkban fontos szerepet foglal el a környezetvédelem, ezen belül a radioaktív hulladékok kezelése, megfelelő elhelyezése. A keletkező radioaktív hulladékok, (pl.: nukleáris erőművek hulladékai, orvos-diagnosztikai maradványok) föld alatti lerakóba kerülnek. A tárolók természetes földtani és mérnöki gátjaiban egyaránt fontos szerepe van a bentonit agyagkőzeteknek, melyek záró réteget képeznek a hulladék és a környezet között.

A vas nagy mennyiségben található meg a földkéregben, elsősorban különböző ércek és más ásványos feldúsulásai formájában. Mivel a litoszférából kitermeléssel kikerülő nehézfémek mennyisége hatalmas, a közvetlenül az emberi környezet közelébe került fémek, így a vas is, befolyást gyakorolhatnak a talajban és a talajvízben végbemenő folyamatokra.

Az agyagásványok a földkéreg fontos szervesetlen komponensei közé tartoznak. Ezek egy részének (szmektitok, vermikulitok) legfőbb jellemzője, hogy az oktaédes és tetraédes rétegek között az ionhelyettesítések révén kialakult negatív töltésfelesleget rendszerint kicserélhető kationok kompenzálják. A kicserélhető kationok mobilitását a környezet, például talajrendszer különböző tulajdonságai nagymértékben befolyásolják. A növények általi felvehetőséget a rendszer kémhatása, vagyis a talajoldat pH viszonyai alakítják ki. A talajban előforduló vagy az antropogén hatásra bekerült fémek mobilitását a savas pH jelentősen megnöveli, ezáltal a táplálékláncban való biomagnifikációja, bioakkumulációja valószínűsíthetően eléri az emberi szervezetet is.

A fémionok vizes oldata és az agyagásványok határfelülete között lejátszódó reakciók tanulmányozása igen fontos szerepet tölt be a talaj geo-kémiai reakciói során végbemenő folyamatok leírásában, illetve modellezésében. Számos szorpciós vizsgálat során használnak montmorillonitot, melyet jól definiált tulajdonságai, és a szemcsemérettől független kationcserélő képessége tesz alkalmassá a határfelületi folyamatok leírására (VAN OLPHEN 1977).

A montmorillonit forrása a bentonit agyagkőzet, melynek fő alkotórésze a montmorillonit, amely rétegrácsos szerkezetű szilikátásvány. A rétegek közti térben a rétegek permanens negatív töltésének köszönhetően képes ioncserével kationokat megkötni (PEYROVI et al. 2005). Ebbe a rétegek közti térbe a megfelelő alkatú molekulák is képesek becsúszni, így kedvező körülmények jöhetnek létre bizonyos reakciók végbemeneteléhez.

A bentonit kőzetet gyakran használják hulladéktárolók szigetelőanyagaként. Munkám során, kloridion ( $^{36}\text{Cl}$ ) és jodidion ( $^{125}\text{I}$ ) szorpcióját vizsgáltam  $\text{Fe}^{3+}$ -ionnal módosított bentonitban és  $\text{Y}^{3+}$  és  $\text{Yb}^{3+}$ -ionokkal módosított bentonitban a kloridion ( $^{36}\text{Cl}$ ), és céziumion ( $^{137}\text{Cs}$ ) migrációját vizsgáltam radioizotópos nyomjelzés segítségével. A kísérlet után kapott migrációs együtthatók értékeiből következtettem arra, hogy milyen változások játszódnak le a pórusrendszerben, ha a bentonit eredeti kationjait más háromértékű kationokra cserélem ki.

Méréseim során két féle módszert alkalmaztunk a migrációs együttható meghatározására, azért hogy minél pontosabb értéket kapjak és ezeknek minél jobb legyen a használhatósága.

## 2. Irodalmi áttekintés

### 2.1. Agyagásványok

Az agyagásványok a primer fillo- és rétegszilikátok átalakulása útján keletkező szekunder ásványok, a földkéreg agyagfrakciójának legfontosabb alkotórészei. Adszorpció és ioncserélő képességük folytán jelentős szerepük van a talajtani folyamatok szabályozásában, illetve a szilárd fázis vízzel szembeni viselkedésének alakításában.

A legtöbb agyagásvány rétegszilikát, de lehetnek amorf szerkezetűek is. Egy-egy réteg  $[\text{SiO}_4]$  tetraéderekből, ill.  $[\text{AlO}_6] \cdot [\text{MgO}_6]$ ,  $[\text{FeO}_6]$  koordinációs oktaéderekből épül fel úgy, hogy azok egymáshoz kapcsolódva végtelen hálót alkotnak. Az egyes tetraéder és oktaéder rétegeket oxigénatomok rétegekötegekké kapcsolják össze. A montmorillonitsor agyagásványai három réteges kötegekből állnak. A rétegrácsos agyagásványok a kapcsolódó rétegek száma és minősége alapján négy csoportba sorolhatók:

1. 1:1 vagy TO típusú agyagásványok (ezekben egy tetraédes és oktaédes sík alkot egy rácsköteget),
2. 2:1 vagy TOT típusú agyagásványok (ezekben két  $\text{SiO}_4$ -háló közé egy  $\text{AlO}(\text{OH})$ -oktaédes réteg épül be),
3. 2:1+1 vagy TOT+O típusú agyagásványok (KÓNYA 1991)
4. kevert szerkezetű (közberétegezett) agyagásványok.

Az agyagásványok a földpátok és a földpátpótlók, savanyú kőzetüveg hidrolitos bomlástermékei. A hidrolitos bomlást szubvulkáni átgőzölés, hidrotermális hatás, halmirolízis vagy szárazföldi, vízdús közegben végbemenő erőteljes mállás okozhatja (DR. VÉGH 1967).

Ennek megfelelően megkülönbéztetjük az autochton agyagásványtelepeket, amikor az anyakőzet eredeti keletkezési helyén agyagásványosodik:

1. *Hidrotermális* hatásra főleg gránit, riolit, dacit ritkábban andezit, bazalt alakul át. Az agyagásványosodás szubvulkáni módon vagy felszínközeli végbe.
2. *Halmirolitos* hatásra keletkeznek szórt vulkáni porból a tengervíz vagy a tavak vizében leülepedett és átalakult telepek.
3. Magmatitok helyi, felszíni erőteljes mállása hozza létre a *reziduális telepeket*.
4. Átmenet az autochton és allochton telepek között a kőszéntelepek fekvőjében mutató kaolinképződés.

Így érhető meg az is, hogy hidrotermálisan egyaránt keletkezhet kaolin és montmorillonit, a szárazföldi mállási telepekre azonban csak a kaolin, a halmirolitos telepekre pedig csak a montmorillonit jellemző (DR. VÉGH 1967).

## 2.2. Montmorillonit, Bentonit

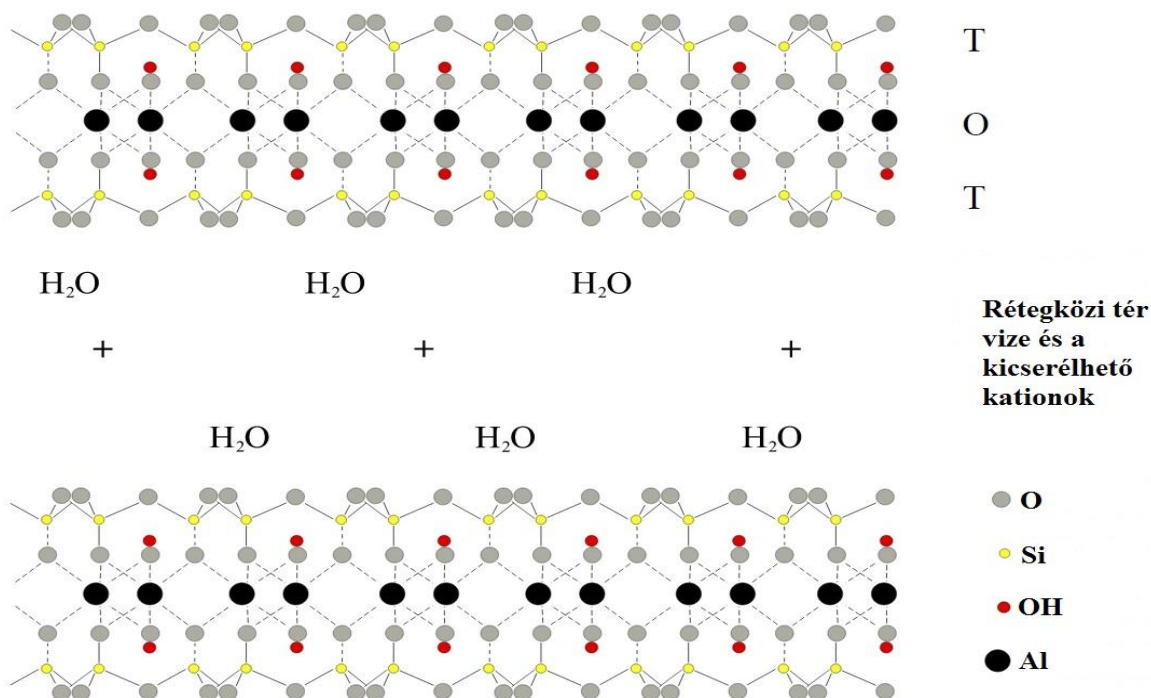
A bentonit olyan montmorillonit-tartalmú agyagos kőzet, amely pont a montmorillonit-tartalmánál fogva erősen duzzadóképes, tixotróp és nagy adszorpcióképességű (NEMECZ 1973). Bentonitnak nevezzük akkor ha montmorillonit tartalma meghaladja az 50%-ot. A montmorillonitnak és csoportjának a rácsfelépítése úgy alakul, hogy 3 rétegű, két  $[\text{SiO}_4]$  tetraéder réteg egy  $[\text{AlO}_6]$  oktaéder réteget fog közre. A rétegekőteg tehát már a rétegsík szerint nem poláros, hanem szimmetrikus. Az Al helyett Mg ionok léphetnek be az oktaéderekbe. Magában a montmorillonitban  $[\text{Al}_2(\text{Si}_4\text{O}_{10}) \cdot (\text{OH})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}]$  az Al egy részét helyettesítheti Mg, úgy hogy a kötések nem telítettek és még más ionokat, Ca-, K-, Na-, H-t képes a rács megkötni. A rétegek közötti kötés itt is gyenge, ezért a vízrétegek közbeiktatására mód van. A vízréteg 1-4 molekula vastagságú lehet (DR. VÉGH 1967). Ennek megfelelően a rétegekőtegek harmónikaszerűen eltávolodnak egymástól, a rács megduzzad.

A bentonit világossárga, zöldessárga, krémszínű fehér, szürke, barna, sőt ritkán fekete agyag. Száradáskor poliédesen aprózódik, nedvesen megduzzad és szappanszerűen kenődik. Friss vágási felülete viaszfényű és viasztapintású. Vízben szétázott lemezkéi 30-300  $\mu\text{m}$  átmérőjűek és 1,5-100  $\mu\text{m}$  vastagságúak. Hőkezeléssel a lemezvastagság csökkenthető és a felület növelhető. A lemezvastagságot befolyásolja a rácsba beépülő idegen kationok minősége is, Ca-nál 14  $\mu\text{m}$ , Na-nál 2  $\mu\text{m}$  vastagságot figyeltek meg.

A bentonit vízfelvételre nagyon hajlamos, miközben eredeti térfogatának 15-30 szorosára is megduzzadhat. A vízfelvétel a rács rétegekőtegei között 1-4 szoros vízmolekula-rétegek beépülésével történik, ill. az egyes szemcsék, lemezkék felületén adszorptíve kötődik meg a víz. Duzzadva plasztikus, zselatin- vagy szappanszerű lesz  $\rightarrow$  felesleges vízben szuszpendálódik és szuszpenziója nagyon állandó. A duzzadóképeséget nagyon befolyásolja a kicserélhető kationhelyeken megkötött ion. Ca-bentonit kevésbé, a Na-bentonit erősen duzzad.

A montmorillonit a TOT (tetraédes-oktaédes-tetraédes) típusú rétegrácsos szerkezetű agyagásványokhoz, azon belül a szmektitek csoportjába tartozik. A

montmorillonit idealizált szerkezeti modellje látható a 2.2.1. ábrán, amely bemutatja a szerkezeti egységek összekapcsolódását, illetve a TOT rétegek közötti „rétegeközi” teret is, melynek köszönhető a montmorillonitok nagy belső felülete, és kötőhelyeinek nagy száma.



**2.2.1 ábra: A montmorillonit idealizált rétegrácsos szerkezete (WEB 2014. 11. 19)**

A montmorillonitoknak permanens negatív töltése van, amelyet a rétegeközi térben levő kicserélhető kationok semlegesítenek (KÓNYA 1991; BERGAYA et al. 2008). A bentonitot előszeretettel alkalmazzák mérnöki építményeknél is, mivel víz hatására megduzzad, és kitölti a rendelkezésére álló teret (M. NAGY et al. 2009). Ezt a tulajdonságot a pórusrendszerének köszönheti. A vízfelvétel során a bentonitba kerülő vizes oldat három típusú pórusban foglal helyet:

- a montmorillonit rétegeközi terében levő víz, amely tartalmazza a permanens negatív töltést semlegesítő kicserélhető kationokat; az anionok innen kizáródnak
- a szemcsék külső felületein levő elektromos kettősréteg vize, amelyben dominálnak a kationok
- szabad pórusvíz: kationok és anionok ekvivalens mennyiségben találhatók.

E modell szerint, az anionok főleg a szabad pórusvízben fordulnak elő, ill. kis mennyiségben az elektromos kettősréteg diffúz részében. Így az anionok a nem szorbeálódó ionok, migrációjuk a szabad pórusokban történik. A kationok viszont

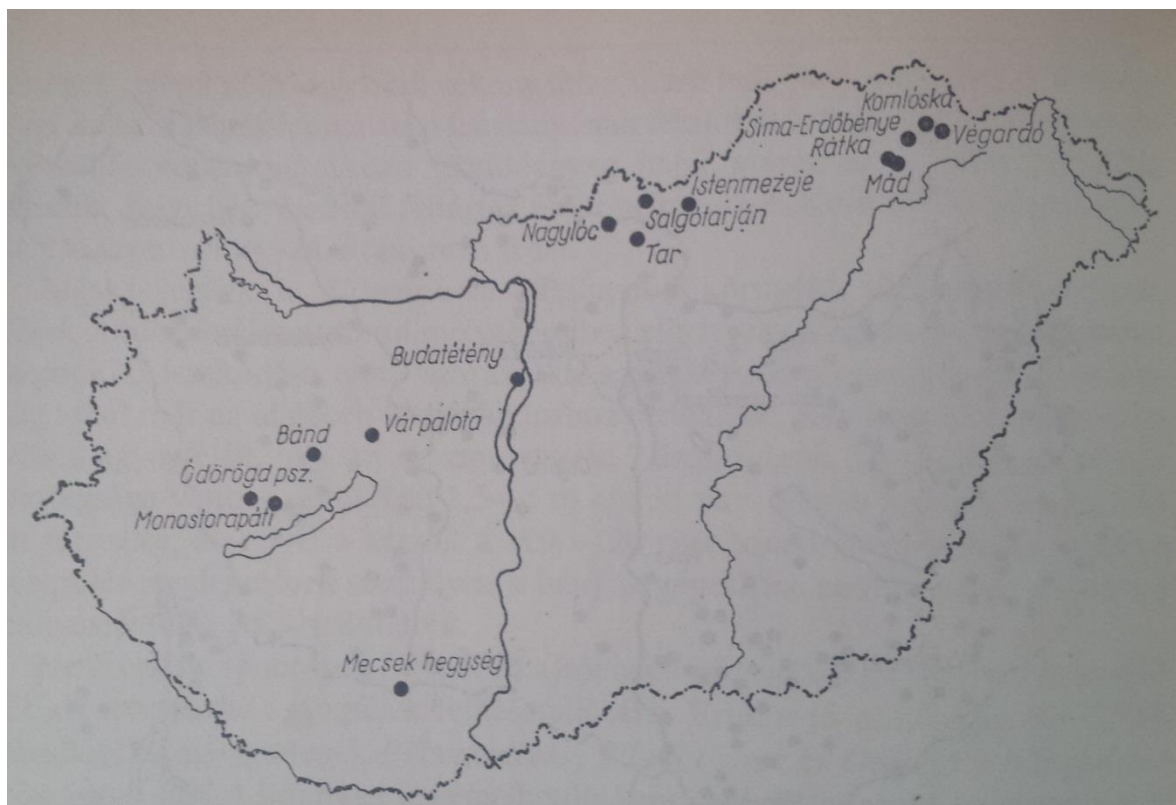
behatolnak a rétegek közötti térbe, ott kicserélődnek, mozgásuk tehát valamennyi vízformát, ill. pórustípust érinti (KOZAKI et al. 1998; MOLERA et al. 2003).

A vizsgálataink során, a nem radioaktív ionok koncentrációját röntgenfluoreszcens analízis segítségével, a radioaktív ionok koncentrációját  $\beta$ - ill.  $\gamma$ -spektrometria segítségével határoztam meg.

### 2.3. Istenmezeje

A halmirolitos elsődleges telepek közül kétségtelenül a legfontosabb, s egyben a legidősebb művelő terület a Mátrától É-ra elhelyezkedő Istenmezeje. A régebbi irodalom szerint nagy kiterjedésű felsőoligocén glaukonitos homokkő közé települt az egyidejű tufaszórás anyagából halmirolitosan, tengervízben bontott bentonittelep.

A telep 2-3 m-es, egyenletes vastagságú. Két szintre oszlik: az alsó réteg tisztább, nagyobb montmorillonit-tartalmú (kb. 84%), de vékonyabb. A közvetlenül rátelepülő, de éles határral elváló felső telep vastagabb, kevésbé tiszta, montmorillonit-tartalma ~68%, szennyezései között a pirit jellegzetes.



2.3.1. ábra: Magyarországi bentonittelepek (DR. VÉGH 1967)

## 2.4. Röntgenfluoreszcencia analízis

A röntgenfluoreszcencia analízis során egy gerjesztő forrással (radioaktív izotóppal vagy röntgensóval) a vizsgálandó minta elemeinek egy belső, legtöbbször K-héjáról ütünk ki egy elektront. A keletkező lyuk egy magasabb energiájú héjon lévő elektronnal pótlódik (KOMLÓSI 2005).

A két pálya energiakülönbsége karakterisztikus röntgenfotonok formájában sugárzódik ki a mintából. Az így keletkezett karakterisztikus röntgensugárzás energiáját mérve következtethetünk a minta elemösszetételére, a sugárzás intenzitását mérve pedig az egyes elemek mennyiségére kapunk információt.

A röntgensugárzás gerjesztése megvalósítható töltött részecskék, illetve elektromágneses sugárzás segítségével is. A gerjesztés akkor következik be, ha a gerjesztő részecske energiája meghaladja az adott elektron kötési energiáját.

A mintában keletkező röntgen- sugárzás intenzitása az abszorpció, rugalmas vagy rugalmatlan szóródás miatt csökken az alábbi összefüggés szerint:

$$I = I_o \cdot e^{-\mu \rho d} \quad (1)$$

ahol

$I$  : a sugárzás intenzitása  $d$  vastagságú és  $\rho$  sűrűségű anyagon történő áthaladás után,

$I_o$  : a sugárzás kezdeti intenzitása,

$\mu$  : a az abszorbeáló anyag tömegabszorpciós koefficiense a beeső sugárzásra vonatkozóan.<sup>[10],[11]</sup>

Az említett folyamatok a mátrix átlagrendszámától függenek, hatásuk kettős: egyrészt befolyásolják a kalibrációt, de a rugalmas és rugalmatlan szórási folyamatok értékes információkat szolgáltatnak a mátrixról.

A minőségi analízis alapja a Moseley által felfedezett, egy adott átmenetre érvényes összefüggés:

$$\sqrt{h\nu} = b(Z - \sigma) \quad (2)$$

ahol

$h\nu$  : a két pálya közötti átmenet - azaz a kibocsátott karakterisztikus röntgensugárzás - energiája

$b$  : a kvantumszámoktól függő koefficiens, egy adott spektrális sorozatra állandó,

$Z$  : az elem rendszáma,

$\sigma$  : az árnyékolási állandó.

A mennyiségi analízis alapja, hogy monokromatikus ( $E_0$  energiájú), jól kollimált gerjesztő sugárzás és homogén minta esetén a kibocsátott primer fluoreszcens sugárzás intenzitása:

$$I_i = S_i C_i \frac{1 - e^{-\rho d \left( \frac{\mu_{s,E_0}}{\sin \Psi_{1eff}} + \frac{\mu_{s,i}}{\sin \Psi_{2eff}} \right)}}{\frac{\mu_{s,E_0}}{\sin \Psi_{1eff}} + \frac{\mu_{s,i}}{\sin \Psi_{2eff}}} \quad (3)$$

ahol

$S_i$  : az  $i$ . elemre vonatkozó érzékenység, adott tiszta elem tömegegységre vonatkozó

intenzitását fejezi ki,

$C_i$  : az  $i$ . elem koncentrációja a mintában,

$\rho d$  : a minta vastagsága g/cm<sup>3</sup>-ben,

$\mu_{s,E_0}$  és  $\mu_{s,i}$  : a minta tömegabszorpciós koefficiense a gerjesztő sugárzásra és az  $i$ . elem karakterisztikus röntgensugárzására vonatkoztatva cm<sup>2</sup>/g-ban,

$\Psi_{1eff}$  és  $\Psi_{2eff}$  : az effektív beesési és a detektálási szög a minta felületéhez viszonyítva.

Legegyszerűbb esetben a külső standard módszert alkalmazzuk a kvantitatív analízis során.

Feltételezzük, hogy a vizsgált minták mátrixának összetétele nem változik. Ezzel közel azonos összetételű mátrixba keverjük a meghatározni a kívánt elem különböző koncentrációit, és mérjük az adott elem karakterisztikus vonalának intenzitását a koncentráció függvényében.

Az így kapott kalibrációs görbe alapján a mért intenzitásokból a minták koncentrációja kiszámítható. A módszert csak a kalibrációs görbe lineáris szakaszának megfelelő tartományban alkalmazhatjuk (VÉRTES et al.; 1998).

## 2.5. Folyadékszcintillációs spektrometria

A folyadékszcintillációs mérés technika kis áthatoló képességű sugárzások ( $\beta$ ,  $\alpha$ , lágy  $\gamma$ ) mérésének egyedülálló módszere (MOLNÁR 2007). A mérés során az abszorpció és az önabszorpció gyakorlatilag kiküszöbölhető, közel 100% hatásfok érhető el. A módszert leggyakrabban <sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C, <sup>90</sup>Sr–<sup>90</sup>Y, <sup>125</sup>I izotópok mérésére, környezetellenőrzés,

kormeghatározás, nyomjelzéses vizsgálatok során alkalmazzák. A folyadékszintillációs



méréseknél, melyet 2.4.1. ábrán látható készülékkel végeztem, a mérendő radioaktív anyagot finom szuszpenzió vagy oldat formájában a szerves szcintillátor anyaghoz keverik. A mérendő minta ezután tartalmazza a radioaktív anyagot, az oldószert valamint a szcintillátort, ezen kívül számos esetben különböző szennyező anyagok is jelen vannak a mintában.

A szcintillátort úgy kell megválasztani, hogy az általa kibocsátott fény hullámhossza a fotokatód érzékeny tartományába essen, régebbi készülékekben ez a feltétel nem teljesíthető, ezért az oldószeren kívül egy hullámhossz eltoló vegyszert is adagolnak a mintához.

### 2.5.1. ábra: A folyadékszintillációs spektrométer képe

Egyetlen béta-részecskének kölcsönhatása révén számos foton emittálódik, számuk arányos a béta-részecske energiájával, így a fotoelektron sokszorozók által mért fényerősség is arányos a detektált béta-részecske energiájával.

Azokat a hatásokat, amelyek során a gerjesztési energia egy része nem jut el a szcintillátorhoz kémiai quench hatásnak (kémiai kioltásnak) nevezzük. A kémiai quench következményeként a béta-sugárzás energiájáról kapott információ hibás lesz, szélsőséges esetben a mért beütésszám is alacsonyabb (a keletkező fotonok száma nem elegendő a detektáláshoz), ez a mérés hatásfokának romlásához vezet. A kémiai quench-et olyan kémiai szennyeződések okozzák, amelyek a gerjesztési energiát a molekula hőmozgásává alakítják (pl. erős savak, lúgok és nagy oxigén tartalmú szerves vegyületek).

## 2.6. Gamma-spektrometria

A gamma-spektrometria a sugárzás intenzitás energia szerinti eloszlásának mérése. Mivel a gamma-sugárzás energiája meghatározott érték, így az energiaértékek nuklidspecifikusak, nuklidkönyvtárból kikereshetők. A gamma-spektrométerek az alábbi

részegységekből állnak: detektor, előerősítő, erősítő, nagyfeszültségű tápegység és egy- vagy többcsatornás amplitúdó-analizátor.

Gamma-sugárzás detektálására készített számlálóknak abszorbensként szcintilláló vagy félvezető anyagokat alkalmaznak. A félvezető detektorok szilárd ionizációs kamrák, így az elektronikus jelek kialakulása ezekben hasonló a gáztöltésű számlálóknak lejátszódó folyamathoz. A szcintillációs számlálóknak a fényfelvillanás úgy jön létre, hogy az abszorpciós folyamatokban keletkező gyors elektronok gerjesztik az abszorbens anyag elektronjait, majd a gerjesztett elektronok alapállapotba mennek át a látható fény tartományába eső hullámhosszú fotont emittálva. Így a beérkező  $\gamma$ -kvantum energiája fényenergiává alakul át. A fényenergia átalakítása elektromos energiává szintén fotoeffektus alapján történik.

## **2.7. A radioaktív izotópok előfordulása a környezetben**

A radioaktív anyagok származhatnak mind természetes, mind antropogén forrásokból. A származástól függetlenül előfordulhatnak valamennyi környezeti elemekben.

### **2.7.1. Radioaktív anyagok előfordulása az atmoszférában**

A különböző fizikai, kémiai biológiai és egyéb folyamatok eredményeként radioaktív anyagok képződnek, amelyek akkumulálódnak, tovaszállítódnak és folyamatosan átalakulnak atmoszférában.

Az atmoszféra radioaktivitását a 20. század elején kezdték tanulmányozni, azonban mélyreható vizsgálatok ebben a vonatkozásban mintegy 50 évvel ezelőtt kezdődtek. E vizsgálatok kezdetben a kísérleti nukleáris robbantások bioszférára gyakorolt hatására vonatkoztak, jelenleg azonban elsősorban a nukleáris erőművek és a fűtőelem előkészítő üzemek gáz emissziójára terjednek ki ezek a vizsgálatok (BARÓTFI 2003).

Az atmoszféra radioaktivitása elsősorban a levegőben lévő radioaktív aeroszoloktól és gázoktól származik, de okozhatják szilárd és folyékony halmazállapotú részecskék is.

A radioaktivitás lehet természetes és mesterséges (antropogén) eredetű. A természetes radioaktív elemek légköri koncentrációjának ismerete rendkívül fontos, ugyanis ennek alapján megbecsülhető az élő szervezeteket érő sugárterhelés, ill. a természetes szinthez viszonyítható és értékelhető a mesterséges (antropogén) eredetű kontamináció a radon, ill. származékai mérése alapján tanulmányozható a légkör egyensúlyi állapota, az örvénylő mozgások, és meghatározható a diffúzió következtetések vonhatók le a talaj összetételével kapcsolatban.

A természetes légköri radioaktivitás tulajdonképpen két forrásból táplálkozik. Az egyik forrást a földfelszínen és a vizekben lévő rádiumizotópok bomlástermékeként keletkező nemesgáz radon izotópok képezik. A másik forrás a felülről érkező nagy energiájú kozmikus sugárzás, amely a levegőben lévő atomok magjaival kölcsönhatásba lép és ennek eredményeként radioaktív izotópok is keletkeznek.

A fölkéregből származó összetevőt a hosszú felezési idejű ősi izotópok ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ) és az urán, ill. tórium bomlási sor elemei képezik.

A nagyenergiájú elsődleges kozmikus sugárzás, amely részben galaktikus eredetű, illetve a naptól származik, egyrészt a föld mágneses energiája, részben a levegő atomjaival való kölcsönhatások miatt nem éri el a földfelszínt. A kozmikus sugárzás nagyenergiájú összetevője az atmoszféra felső rétegein áthatolva másodlagos részecskéket kelt, a kis energiájú komponens pedig az ionizáció révén veszíti el energiáját. A kölcsönhatás során részecskék (protonok, neutronok, elektronok, pimezonok) és fotonok, ill. a létrejövő magreakciók révén ún. kozmogén radioizotópok ( $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$  stb.) keletkeznek. A kozmikus komponensből származó dózis a földrajzi szélességtől, és a tengerszint feletti magasságtól függ.

Az atmoszféra radioaktivitását az azt előidéző források mellett az éghajlati, a meteorológiai viszonyok is befolyásolják. Így egyebek között meghatározó tényező a földrajzi hely, a szél sebessége, iránya, a csapadék halmazállapota, mennyisége, gyakorisága, valamint a levegő szennyezettsége. A radionuklidok az atmoszférában aeroszoloikat képezhetnek, a porszemeken adszorbeálódhatnak, ill. kondenzációs magokat képezhetnek.

A Föld korával közel azonos felezési idejű radioaktív nuklidok ( $^{235}\text{U}$ ,  $T = 7,13 \times 10^8$  év;  $^{238}\text{U}$ ,  $T = 4,5 \times 1109$  év;  $^{40}\text{K}$ ,  $T = 1,27 \times 10^9$  év;  $^{232}\text{Th}$ ,  $T = 1,39 \times 10^{10}$  év), amelyek csak elhanyagolható mennyiségben kerülnek az atmoszférába a különböző ezeket tartalmazó ásványokból és kőzetekből (KÓNYA et al. 2012).

Az atmoszferikus levegő természetes aktivitása a talaj radioaktív anyag tartalmától, ill. az anyagok talaj és légkör közötti cseréjének intenzitásától függ. A folyamatot gyorsítja a hőmérséklet növekedése és a légköri nyomás csökkenése.

A légköri természetes radioaktivitás vertikális eloszlását, tehát a felszín fölött radioaktív koncentrációt és annak változását elsősorban a termikus kicserélődés határozza meg. A természetes radioaktív radon izotópokat a termikus kicserélődés juttatja a magasabb rétegekbe, és a koncentráció a magassággal csökken.

Röviden érdemes kitérni a kozmikus sugárzás által termelt  $^{14}\text{C}$  izotóp (radiokarbon) keletkezésére és az emberi tevékenység hatására bekövetkező koncentráció változására. A kozmikus sugárzás által termelt szekunder neutronok ütközés során a légkör  $^{14}\text{N}$  atomjaival kölcsönhatásba lépnek és a szénnek egy radioaktív izotópja keletkezik, amely  $\beta$ -emisszióval,  $5730 \pm 40$  év felezési idővel bomlik. A képződött  $^{14}\text{C}$  rövid időn belül  $^{14}\text{CO}_2$ -vé oxidálódik, amely a többi széndioxid ( $^{12}\text{CO}_2$ ) molekulával keveredik és részt vesz a szén biogeokémiai ciklusában.

A mesterséges (antropogén) eredetű radionuklidok forrásai a következők lehetnek:

- kísérleti nukleáris robbantások,
- a nukleáris erőművek fűtőanyagának előkészítésével összefüggő tevékenységek és létesítmények (bányászat, ércdúsítás, meddőhányók),
- az atomerőművek normál üzemeltetésével kapcsolatos kibocsátások,
- nukleáris balesetek,
- gyógyászati tevékenység (diagnosztizálás, terápia),
- kutatási és egyéb tevékenység.

Lényeges a környezetszennyezés szempontjából, hogy a robbanást követően a légkörben szétszóródó hasadványok milyen eloszlásban és mennyi idő múlva érik el a Föld felszínét. Ez az adott hely környezeti feltételei és meteorológiai paraméterei mellett a robbantás magasságától és hatóerejétől függ. A radioaktív anyagok Föld felszínre kerülését a radioaktív kihullás (fall out) jelensége gyorsítja. Ennek mechanizmusa a következő. A robbantás helyén kialakult láncreakcióval és a fúzióval összefüggő hő ill. ionizáló sugárzás hatására ionizált állapotban lévő gázokból és vízgőzből álló tűzgömb jön létre. Ennek környékén – a gyorsan kialakuló hőmérséklet-és nyomáskülönbség miatt – olyan áramlási viszonyok alakulnak ki, melyek hatására nagy mennyiségű, a felszínről származó anyag áramlik a tűzgömb belsejébe. A bekerülő anyag a magas hőmérsékleten elpárolog, az energiatermelő reakciók megszűnését követően a tűzgömb hőmérséklete rohamosan csökken, majd átmérője és a felszíntől mért távolsága nő, míg végül jellegzetes gomba alakú ködfelhő formájában, a hatóerő nagyságától függő magasságban stabilizálódik. A 100 kt-nál kisebb hatóerő esetén a radioaktív ködfelhő a troposzférában stabilizálódik, míg a Mt nagyságrendű hatóerő tartományban behatol a sztratoszférába. A lehűlés során a vízgőz ill. a felszínről bekerülő anyag kicsapódik és a képződő szemcsékre a radioaktív hasadványok ráakódnak, és a szemcsék tömegétől függő sebességgel hullanak a felszínre.

### 2.7.2. Radioaktív izotópok a hidroszférában

Az atmoszférához hasonlóan a hidroszférában előforduló radioaktív anyagok természetes és mesterséges (antropogén) forrásokból származhatnak, ennek megfelelően természetes és mesterséges eredetű radionuklidokat különböztetünk meg.

A hidroszféra természetes radioaktivitása elsősorban a litoszférával, ill. az atmoszférával való állandó kölcsönhatás eredménye.

A természetes eredetű sugárzó anyagok körébe azok a radionuklidok tartoznak, amelyek a talajból, ill. kőzetekből kioldódva kerülnek a felszíni vagy felszín alatti vizekbe, mint radioaktív izotópok, vagy ezek radioaktív leányelemei. Ugyancsak a természetes radioaktív anyagok körébe tartoznak a kozmikus sugárzás hatására elsősorban a felső légkörben képződő, és onnan a felszíni vizekbe kerülő radionuklidok (nedves, ill. száraz kihullás).

A felszíni vizek radioaktivitását befolyásolják, ill. módosítják a vízben élő szervezetek (algák, moszatok, halak), amelyek táplálékfelvételükkel a vízben lévő radioaktív izotópokat is inkorporálják (testükbe juttatják). Az élő szervezetek elpusztulását követően, a szerves anyagok lebomlása után ezek a radioaktív anyagok visszakerülnek a vízbe (BARÓTFI 2003).

A felszíni vizek esetében a radioaktivitás tekintetében különbség tapasztalható az álló vizek és a vízfolyások között. A tavakban akkumulálódnak a bekerülő radioaktív anyagok, ezért ezek radioaktivitási szintje nagyobb, mint a vízfolyásoké. Ugyanakkor az ásvány-és gyógyvizek radioaktivitása jelentős mértékben meghaladja a felszíni vizek aktív-anyag tartalmát. A radionuklidok a vízben oldható és oldhatatlan, ill. egyszerű és komplex ionok formájában lehetnek jelen.

Az ásványvizek természetes aktivitásának egyik fő komponense a gáz halmazállapotú radon. A felszín alatti vizek természetes aktivitásának egyéb komponensei az urán és a rádium.

A víz mesterséges (antropogén) radioaktivitását elsősorban a maghasadási reakciók (nukleáris robbantások, nukleáris reaktorok) okozzák. A tudományos kutatásból és a gyógyászati tevékenységből származó mesterséges radioaktivitás nem jelentős.

Elsősorban a következő mesterséges eredetű radionuklidok fordulnak elő általában:  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  stb. Egyéb radionuklidok az atomreaktorokban és nukleáris fegyverekben lévő anyagokra gyakorolt neutronsugárzás hatására jönnek létre, ( $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ) vagy az atmoszféra alkotórészei ( $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ). A legveszélyesebbek a

hosszú felezési idejű, nagy sűrűségű ionizáló sugárzást kibocsátó és az élő szervezetekben felhalmozódó radionuklidok. Különösen toxikus a  $^{226}\text{Ra}$ , a  $^{90}\text{Sr}$ , a  $^{90}\text{Y}$ , a  $^{210}\text{Pb}$ , és a  $^{210}\text{Po}$ .

Az ivóvíz radiológiai minősítésére első közelítésben, tájékoztató adatként megengedett az össz- $\alpha$ - ill.  $\beta$ -aktivitás, amely alapján következtetni lehet alfa, ill. béta aktív radionuklidok jelenlétére, anélkül hogy az egyes radionuklidok minőségét bonyolult elemzéssel meghatároznánk. Ezek megengedhető szintjét napi 2 l víz fogyasztását feltételezve 0,05 mSv·a<sup>-1</sup> értékben határozták meg. A „nem aktív szint” aktivitási értéket tekintik az egészségügyi hatóságok azon határértéknek, amely alatt nem szükséges további elemzések elvégzése. Ennek értéke az össz-alfa-aktivitás esetén 0,1 Bq·l<sup>-1</sup>, és 1,0 Bq·l<sup>-1</sup> a össz-béta aktivitásra vonatkozóan. Amennyiben a víz radioaktivitásának mértéke az előzőekben megadott határértékeket meghaladja, akkor részletes vizsgálat keretében külön-külön kell az egyes radionuklidok mennyiségét meghatározni (KÓNYA et al. 2012)

Amennyiben a vízbe radioaktív hulladék kerül, akkor a víz vizsgálatán túl, analizálni kell a hordalékot, a vízi flórában és faunában az akkumulációt, valamint a fenékiszapot.

Vannak olyan radionuklidok, amelyek csak bizonyos szervezetekben és szervekben szelektív módon akkumulálódnak. Ilyen szempontból különösen a halak kontaminálódása veszélyes az emberi táplálkozásra történő felhasználás miatt.

A hidroszféra radioaktív kontaminációjából származó sugárterhelés az élőszervezetre két módon hat :külső és belső jelleggel. A külső terhelés (pl. fürdéskor) a szervezetet érő sugárhatás általában elhanyagolható, a belső terheléssel összehasonlítva, amely ivóvíz formájában, vagy a hidroszférában élő vízi élőszervezetek élelmiszerként történő felhasználással inkorporálódik a szervezetben.

Az ivóvíz radioaktivitása a különböző kezelési eljárások következtében általában lényegesen kisebb, mint az élő vizeké. A hidroszféra radioaktív kontaminációjának és ennek időbeli változásának vizsgálatára bizonyos élő szervezetek alkalmasak.

Az indikátor szervezeteknek két típusát különböztethetjük meg. Az egyik ún. aktuálszint-monitor gyorsan akkumulál, és ugyancsak gyorsan lebont, ill. ürít. A másik típus az ún. integrálómonitor, amelynek radionuklid-tartalma állandó környezeti szint esetén is emelkedik, és csak hosszú idő után stabilizálódik. Ezek a szervezetek, a lassú kiürülés miatt a felvett radioaktív izotópokat hosszabb ideig megkötve tartják, és ezáltal radioaktivitásuk hosszabb időszak kontaminációs szintjéről tájékoztat. (DR. VÉGH 1967)

### 2.7.3. Radioaktív izotópok a pedoszférában

A talaj szerepe a radioaktív anyagok megkötésében és felhalmozásában igen jelentős. Radioaktivitása a természetes környezetben előforduló nagy számú radioaktív izotóp előfordulásával magyarázható. A radioaktív izotópok természetes és mesterséges forrásokból származhatnak.

A radioaktív nuklidok a következő négy csoport valamelyikébe sorolhatók a radioaktív elemek bomlás sorának közbülső, nagy atomtömegű termékei mint az uránium, az aktínium és a tórium, kis atomtömegű, de hosszú felezési idejű kis természetes aktivitású elemek radioaktív izotópjai, mint a  $^{40}\text{K}$ , a  $^{87}\text{Rb}$ , a  $^{147}\text{Sm}$ , a  $^{48}\text{Ca}$ , a  $^{96}\text{Zr}$  (BARÓTFI 2003)

Az atmoszférában a kozmikus sugárzás hatására stabil izotópokból képződő radioaktív izotópok, mint a  $^3\text{H}$ , a  $^7\text{Be}$ , a  $^{10}\text{Be}$ , a  $^{14}\text{C}$ , a nukleáris robbanások alatt képződő radioaktív izotópok, nukleáris berendezések üzemelésével vagy balesetével összefüggésben a stabil izotópok neutronokkal történő sugárzásával. A talajok természetes radioaktivitása a geológiai viszonyok (alapközet származása és összetétele, a mállás, a talajképződési folyamat jellege stb.) függvénye.

Így pl. a savas jellegű kőzetek mállásából képződő talajokban a radioaktív elemek mennyisége nagyobb, mint azoké a talajoké, amelyek bázikus kőzetek mállásából képződtek. A kötött talajokban a radioaktív elemek mennyisége nagyobb, mint a homok talajokban. A radioaktív izotópok eloszlása a talaj profilban általában egyenletes.

A természetes radioaktivitás elsősorban a hosszú felezési idejű izotópokból alakul ki, azokból amelyek felezési ideje 108–1016 év közötti.

Az aktivitás szintje elsősorban a talaj urán, tórium, rádium és kálium tartalmától függ. Ezen elemek sugárzási energiája képviseli az összes természetes radioaktív elem sugárzási energiájának 98%-át. A hazai talajok  $\alpha$ -aktivitása általában 0,4–3,0 Bq · g<sup>-1</sup> között változik.

A talajok természetes radioaktivitása a geológiai viszonyoktól, az alkalmazott agrotechnikai módszerektől (műtrágyázás, öntözés), a meteorológiai paraméterektől és egyéb környezeti tényezőktől függ.

A természetes radioaktivitás jelentős részét a természetes kálium  $^{40}\text{K}$  izotópja okozza. Ez az izotóp  $\beta$ -és  $\gamma$ -sugarakat bocsát ki és a természetes káliumban 0,0119%-os arányban fordul elő. A talajok átlagos kálium tartalma 1–2% körül alakul, de a gránitos kőzetekből kialakult talajok esetében elérheti a 3–4%-ot is. A káliumhoz hasonló kémiai tulajdonságú a rubídium, melynek 27,85%-a a  $^{87}\text{Rb}$  izotóp, azonban a talajok átlagos rubídium tartalma csupán 6·10<sup>-3</sup> %, így az izotóp aktivitása nagyságrendekkel kisebb, mint  $^{40}\text{K}$ -é.

A talajok felső rétegének radon tartalma az évszaktól, ill. a hőmérséklettől függ. Nyáron tapasztalható a maximum, télen ill. ősszel a minimum ami a hőmérsékleti gradienssel magyarázható. A radioaktív szennyezettség kialakulásában a talajnak elsősorban közvetítő szerepe van azáltal, hogy megköti a levegőből, a csapadékból, ill. a felszíni vizekből a talajra jutó hasadási termékeket, a rajta élő növényeken keresztül bekapcsolódik a tápanyagláncba. A talaj szennyezettségének mértéke határozza meg a tápanyaglánc egyes elemeinek szennyezettségét. A radioaktív elemek mesterséges forrásai a maghasadás és egyéb nukleáris reakciók eredményeként, tehát emberi beavatkozás hatására jönnek létre. Az így képződő radioaktív izotópok a a kihullás (fall out) révén kerülnek a talaj felszínére, ill. a talajba.

Környezeti szempontból a stroncium és a cézium a legveszélyesebb, figyelembe véve viszonylag hosszú felezési idejüket (28, ill. 30 év), (WEISZBURG et al. 2008) nagy sugárzási energiájukat és részvételüket a táplálékláncban, valamint az élő szervezetekben való akkumulálódó képességüket, aminek eredménye, hogy kémiai hasonlóságot mutatnak bizonyos bigén elemekhez. Így a radioaktív stroncium a kalciumhoz, a radioaktív cézium a káliumhoz hasonló karakterű. Ezek akkumulálódása az élő szervezetekben az izotóp kémiai formájától, és a talaj jellegétől függ. Ezek nagyobb arányú jelenléte a talajban kicserélhető ionként való előfordulást jelent. A stronciumot a kalcium igényes, a céziumot a kálium igényes növények veszik fel a talajból elsősorban.

A  $^{137}\text{Cs}$  mozgékonyasága a talajban kisebb mértékű, mint a  $^{90}\text{Sr}$ -é, ami az agyagásványokhoz való erős kötődéssel magyarázható. Vizsgálatokra alapozott megállapítások szerint az agyagásványok a céziumot olyan erősen adszorbeálják, hogy a növény jelentősebb mennyiségű céziumot nem képes a talajból felvenni. A káliumionok nagy koncentrációban való jelenléte ugyanakkor jelentős mértékben csökkenti a cézium adszorpcióját. A cézium adszorpciójának sorrendje a különböző agyagásványokon a következő:

illit > montmorillonit > kaolinit (NEMECZ 1973)

A talajok radioaktív szennyezettségének mértékét a domborzati viszonyok, a talaj mechanikai összetétele, a talaj kémiai jellemzői, az agrotechnikai módszerek, és az alkalmazott agrokémiai módszerek befolyásolják.

A domborzati viszonyok vonatkozásában eltérő a lejtős és a síkvidéki területek szennyezettsége. A lejtős területeken a nagyobb mértékű lefolyás és az erózió miatti talaj lepusztulás következtében e területeken kisebb mértékű a talaj radioaktív anyag tartalma, tehát a kontaminációja.

A mechanikai összetétel a talaj felszínére kerülő radioaktív anyagok megkötődését befolyásolja, ugyanis a könnyű szerkezetű talajok esetében ezek az anyagok viszonylag gyorsan mosódnak le a mélyebb rétegekbe, így a felső rétegekben nem tudnak megkötődni. A mélyebb rétegekből a növények nem képesek felvenni a radioaktív izotópokat, így nem kerülhetnek bele a táplálékláncba.

A kémiai jellemzők közül a kalcium tartalom befolyásolja a talajok stroncium izotópokkal való szennyeződésének mértékét. Ugyancsak befolyásolja ezek felvételét a talaj sótartalma. A nátrium és kálium vagy a kalcium és magnézium koncentrációjának növekedés csökkenti a radioaktív izotópok megkötődését a talajban. A  $^{137}\text{Cs}$  felvételét a talaj K-és inaktív Cs-tartalma, valamint ioncserélő képessége, a pH-ja és nedvességtartalma befolyásolja.

A radioaktív szennyezőanyagok felhalmozódását jelentős mértékben befolyásolja a területen alkalmazott művelési mód. Így gyepterületeken a  $^{90}\text{Sr}$  legnagyobb része a felső 5 cm-es rétegben halmozódik fel, a szántóföldi művelés alatt álló területeken a 0–15cm-es rétegben 1–3-szor annyi  $^{90}\text{Sr}$  halmozódik fel, mint a 15–50 cm-es rétegben. Általában megállapítható, hogy a légkörből a talaj felszínére kerülő radioaktív izotópok eloszlása a mezőgazdasági művelés alatt álló területeken a talaj felső 20–30 cm-es rétegében közel homogén. A szántóföldi művelés alatt álló területeken a talajok felső rétegének kontaminációja kisebb, mint a művelés alatt nem álló területek szennyezettségi szintje. Így a felső talajréteg  $^{137}\text{Cs}$  szennyezettsége legelő területeken háromszoros a szántóföldi területekhez viszonyítva.

Az alkalmazott agrokémiai módszerek közül a meszezés, ill. a műtrágyázás befolyásolja a talaj radioaktivitását. Így a meszezés, tehát a talaj kalcium tartalmának növelése az Sr/Ca arány csökkentésével, jelentősen mérsékli a növények  $^{90}\text{Sr}$ , a nagy mennyiségű kálium adagolással (műtrágyázás) a talaj Cs/K aránya csökkenthető, és mérséklődik a növények  $^{137}\text{Cs}$  felvétele. A műtrágyák általában befolyásolják a radioaktív kontaminációt okozó izotópoknak a talajból a növényekbe jutását (BARÓTFI 2003)

A műtrágyázással jelentős mennyiségű természetes eredetű radioaktív anyag kerül a talajba, így a  $^{40}\text{K}$ -on kívül urán, tórium,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , és  $^{210}\text{Po}$ . A műtrágyák közül elsősorban a foszfátotoknak jelentős az urán és bomlási sorába tartozó leányelemek aktivitása. A műtrágyázással ugyanakkor jelentős mértékben nő a talajok természetes radioaktivitása.

A talajok radioaktív kontaminációjának mértékére befolyást gyakorol a termesztett növény faj (az evapotranszpiráció, ill. a gyökerezési mélység révén), ill. a termés mennyiség.

A termés betakarítása általában csökkenti ugyan a talaj radioaktivitását, azonban a radioaktív anyagok talajban lévő teljes mennyiségét figyelembe véve ez nem jelentős.

## **2.8. A radioaktív hulladékok**

A radioaktív izotópokkal végzett munkák egyik legkritikusabb része a keletkező hulladékok biztonságos elhelyezése, tárolása. Radioaktivitást tekintve a legnagyobb mennyiségű hulladék az atomerőművek működtetése során keletkezik. A hulladékokat radioaktivitásuk, azaz a bomlás hőteljesítménye ill. a bennük levő izotópok felezési ideje alapján országoként változó módon csoportosítják. Magyarországon erről a 47/2003. (VIII. 6.) számú ESZCSM rendelet intézkedik. A különböző csoportokba sorolt radioaktív hulladékok biztonságos tárolását hosszú időre több száz, ezer évre, sőt ezt meghaladóan kell biztosítani.

A radioaktív hulladékok elhelyezésére szolgáló föld alatti tárolók létesítése során megfogalmazott követelmények egyike tehát a befogadó képződmény lehető legnagyobb radioaktív izolációs képessége. Ehhez, egyebek között szükséges, hogy a befogadó közet nagymértékben kösse meg a radioaktív izotópokat, ezáltal csökkentve azok migrációját. Ennek a feltételnek a teljesülését az agyagásványok szorpciós képességük révén elősegítik. Ezért ezeket mesterséges mérnöki gátként is alkalmazhatják, ahol a természetes környezetben nem fordulnak elő elegendő mennyiségben (KÓNYA et al. 2006).

## **2.9. Radioaktív izotópok migrációja**

A természetes környezetbe jutó radioaktív izotópok kölcsönhatásba kerülnek a felszín alatti vizekkel. A vízben oldható anyagok mozgását a földtani képződményekben egyrészt a felszíni vízmozgást meghatározó biológiai folyamatok, másrészt a földtani képződmények és a radioaktív izotópok közötti kölcsönhatások befolyásolják (KÓNYA et al. 2006). Ha reális képet akarunk kapni valamely anyag mozgásáról, egy adott közegben, akkor egyaránt vizsgálni kell a mozgást biztosító közeg (víz) és az adott anyag kémiai formáit, ill. szorpciós tulajdonságait az adott közegre, mint szorbensre vonatkozóan.

1, A vízmozgást meghatározó folyamatok:

- az konvekció, azaz az oldott anyag mozgása az áramló vízzel
- az oldatok keveredése a makropórusokban, melynek oka, hogy a különböző méretű pórusokban levő folyadékok eltérő áramlási sebességgel mozognak
- az adott anyag diffúziója a vízben

2, A szilárd mátrix és az oldott anyag közötti kölcsönhatások:

- szorpció
- kicsapódás
- a szilárd mátrix esetleges változása, bomlása

Ha a vízzel oldható anyagot a közeg nem szorbeálja, az anyagtranszportot az első három folyamat befolyásolja, tehát az illető anyag együtt mozog a vízzel.

A földtani képződmények, kőzetek megkötik a radioaktív ionokat, ezáltal jelentősen befolyásolva azok migrációjának sebességét az adott közegben. A megkötődési folyamat erősen függ az ásványos összetételtől. A földtani képződményekre jellemző, hogy azok ásványos összetétele még egy adott helyen is igen változatos, akár horizontális, akár a vertikális eloszlást tekintjük.

## 2.10. A vizsgált izotópok keletkezése

### 2.10.1. Kloridion ( $^{36}\text{Cl}$ )

Az atomreaktorok betonozásánál használt vízben található a  $^{35}\text{Cl}$ .  $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$  magreakcióban, a 308 000 év hosszú felezési idejű, lágy béta-sugárzó  $^{36}\text{Cl}$ -izotóp is keletkezik (KÓNYA et al. 2012).

### 2.10.2. Jodidion ( $^{131}\text{I}$ )

Az urán-235 hasadásával, nagy hozammal keletkeznek a jódizotópok. A tellúr besugárzásával, majd béta-bomlással keletkezik.  $^{130}\text{Te}(n,\gamma)^{131}\text{Te} \rightarrow ^{131}\text{I}$ :  $t_{1/2}=8$  nap,  $\beta^-$ - és  $\gamma$ -sugárzó. Az atomreaktorok kiégett fűtőelemeiből végzett Mo-99-előállítás során a szeparációs lépések egyikében, savazással szabadítják fel a I-131 radionuklidot, ami a Te technológiánál modernebb, nagyobb aktivitásokat és fajlagos aktivitásokat eredményez. Vagyis a Mo-99 elválasztás "mellékterméke" a I-131. Orvosi alkalmazása fontos (KÓNYA et al. 2012).

### 2.10.3. Céziumion ( $^{137}\text{Cs}$ )

Az urán-235 hasadásával, nagy hozammal két Cs-izotóp keletkezik, a Cs-134 és a Cs-137. A hasadásnál meghatározott arányban keletkeznek, majd Cs-134 gyorsabban bomlik, így a kétfele izotóp arányából például egy környezetszennyezés időpontja meghatározható. A Cs-134 a következő reakcióban is előállítható:  $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}$ ,  $t_{1/2}=2$  év,  $\beta^-$ - és  $\gamma$ -sugárzó. A Cs-137 felezési ideje 30 év,  $\beta^-$ - és  $\gamma$ -sugárzó. Mivel a talajon nagyon

erősen megkötődik, migrációja igen lassú, ezért mostanában használják talajképződési ill. –eróziós folyamatok vizsgálatára. Ehhez a talajban a nukleáris szennyeződésekből mar egyébként is jelenlévő Cs-137-et mérik (KÓNYA et al. 2012).

### 3. Kísérleti rész

#### 3.1. A felhasznált Ca-bentonit jellemzése

Az alkalmazott kalcium(II)-bentonit Istenmezejéről származik,  $(\text{Si}_{7.7}\text{Al}_{0.3})(\text{Al}_{2.6}\text{Fe(III)}_{0.7}\text{Fe(II)}_{0.1}\text{Mg}_{0.5})\text{O}_{20}(\text{OH})_4\text{Ca}_{0.4}$  összetétellel rendelkezik. Montmorillonit-tartalma a szállító (Országos Érc- és Ásványbánya Vállalat egri Központi Laboratóriuma) szerint termoanalitikai, röntgendiffrakciós ill. etilén-glikol-adszorpciós vizsgálatok alapján 96 %. A MÁFI-ban (Magyar Állami Földtudományi Intézet) korábbi röntgendiffrakciós és termoanalitikai vizsgálatok szerint 92 % a montmorillonit-tartalom, a kísérő ásványok 3 % kaolinit, 5 % kalcit és kvarc nyomokban. A kicserélhető kationok kalciumionok. Kationcserélő kapacitását ammónium-acetátos (RICHARDS 1957) módszerrel határoztuk meg és kétértékű ionra nézve 52 mmol/100 g-nak (egyértékű ionra 104 mmol/100 g-nak) találtuk. A BET-módszerrel meghatározott fajlagos felülete (azaz a külső felülete) 93,5 m<sup>2</sup>/g (M. NAGY et al.; 2007).

#### 3.2. A felhasznált vas(III)-bentonit készítése

A méréseim során, jodidion (<sup>125</sup>I) és céziumion (<sup>137</sup>Cs) szorpcióját vizsgáltam, radioaktív nyomjelzés használatával. A kísérleteket vas(III)-ionnal módosított bentoniton végeztem. Ehhez 50,00g analitikai tisztaságú FeCl<sub>3</sub>-ot oldottam acetonban hűtőfürdő alkalmazása mellett, mivel a solvatációs hő keletkezése igen jelentős mértékű. Miután a teljes FeCl<sub>3</sub>-ot feloldottam, ekvivalens mennyiségű Ca-bentonitot (kalcium- és vas(III)-ionokra vonatkoztatva) adtam a rendszerhez. A keletkezett anyagot 24 óráig mágneses keverőre helyeztem, a homogenizálódás elősegítése érdekében, majd acetonnal mostam a bentonitot és levegőn szobahőmérsékleten szárítottam.

#### 3.3 Az Y<sup>3+</sup> és a Yb<sup>3+</sup>-bentonitok készítése

A ritkaföldfém bentonitok elkészítése több lépcsőben történt. Első lépésben Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> illetve YbCl<sub>3</sub>-ból készítettünk karbonátokat. Ez úgy történt, hogy a Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> és a YbCl<sub>3</sub>-ot oldottuk cc. HCl-ban. A megfelelő oldódást követően Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-at adtunk a rendszerhez. Miután elkészítettük a karbonátokat, ezt követően ritkaföldfém-perklorát oldatokat

készítettünk, ami azt jelenti, hogy 50 ml  $\text{HClO}_4$ -et adtunk a karbonátokhoz, figyelve a megfelelő oldódást és a pH-t. Ezt az adagolást addig ismételtük, míg az oldódás, teljes mértékben meg nem történt. A sikeresen elkészített perklorát oldatokat ezután a megfelelő mennyiségű Ca-bentonittal elegyítettük, majd a megfelelő homogenizálódás érdekében 24 órára mágneses kevertetőre helyeztem és utána vákuumszűrő segítségével szűrtem, levegőn szárítottam.

### 3.4. A migrációs kísérlet előkészítése

A migrációs vizsgálatokat, a 3.5.1. és a 3.5.2. ábrán látható cellákban hajtottam végre. Ezeket a cellákat a témavezetőim tervezték meg és évek óta sikeresen alkalmazzuk a migrációs kísérleteinkhez a migrációs együttható meghatározására. A kísérlet meghatározott körülmények között zajlik, tehát szobahőmérsékleten és normál légköri nyomáson. A cella középső részébe helyeztem be a 3.4.1. ábrán látható bentonit pasztillákat, melyet kézi pasztillázó segítségével 150bar nyomáson készítettem el (5mm vastag és átmérője 25mm).



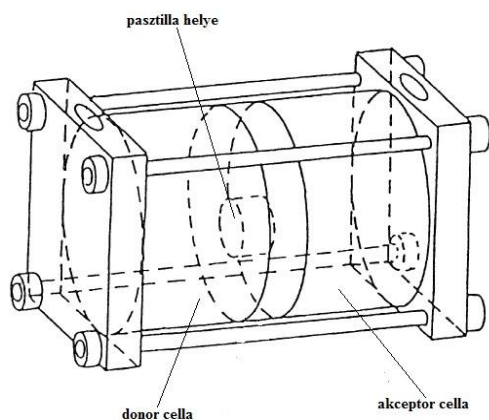
**3.4.1. ábra: Az elkészített  $\text{Y}^{3+}$ - és  $\text{Yb}^{3+}$ -bentonit pasztillák**

Mindkét oldalára  $0,45\ \mu\text{m}$  pórusméretű cellulóz-nitrát membránszűrőt tettem, hogy a pasztilla ne kerüljön át egyik folyadékos cellarészbe se. A migrációs kísérletek előtt a donor és az akceptor cellákba háromszorosan desztillált vizet raktam, hogy a pasztilla megfelelően beduzzadjon a helyére. A duzzadási folyamat időtartama kb. 1 hónap volt, a bentonit által felvett vizet folyamatosan pótoltam és az értékeket a jegyzőkönyvben rögzítettem.

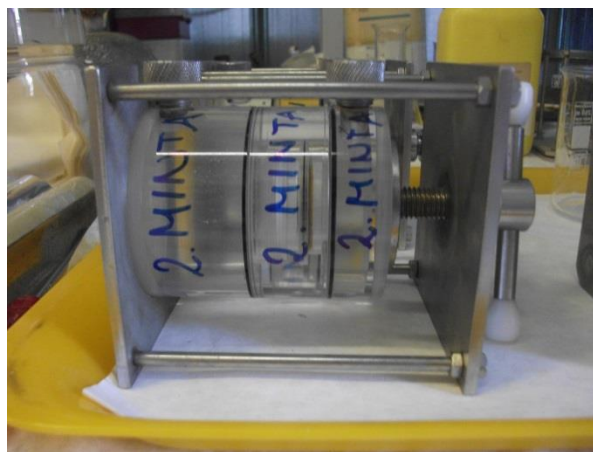
### 3.5. A migrációs kísérlet menete

Miután a duzzadás megfelelő volt, a donor cellában az oldatot kicseréltem a radioaktív izotópot tartalmazó oldatra (kloridion ( $^{36}\text{Cl}$ ), és céziumion ( $^{137}\text{Cs}$ )). Meghatározott időpontokban a donor és az akceptor cellából is 500 $\mu\text{l}$  mintát vettem ki, ezt háromszor desztillált vízzel pótoltam. A minták radioaktivitását béta-sugárzásuk alapján folyadékszintillációs spektrométer (Wallac 1409) segítségével mértem. A mintákhoz 4,5  $\text{cm}^3$  szintillációs „koktélt” adtam, melynek összetétele:

- 4 g 2,5-difenil-oxazol (PPO),
- 106  $\text{cm}^3$  etil-alkohol,
- 37  $\text{cm}^3$  etilén-glikol,
- 257  $\text{cm}^3$  Triton X-100,
- 1000  $\text{cm}^3$ -re feltöltve xilollal.



**3.5.1. ábra: A migrációs cella  
sematikus rajza**



**3.5.2. ábra: Az összeszerelt migrációs cella  
fényképe**

Miután a migrációs kísérletet befejeztem és a cellát szétszedtem, a még nedves pasztillákon 3db lyukasztást ejtettem meg. A lyukasztott darabok mindegyikét 6 nagyjából egyenlő részre szeleteltem fel és száradás után gamma-spektrométerrel mértem a  $^{137}\text{Cs}$ -izotópok aktivitását, ill. folyadék szintillációs módszerrel a  $^{36}\text{Cl}$ -izotóp aktivitását.

### 3.6. A szorpciós kísérlet

Vas(III)-bentoniton  $^{125}\text{I}$ - és  $^{36}\text{Cl}$ -ionnal végeztük. A vizsgálatokhoz az optimális szilárd/oldat arány meghatározásához Kroeker-izotermát vettünk fel. Ezt úgy végeztük el,

hogy különböző tömegű bentonithoz adott mennyiségű izotópos oldatot adtunk és 30 perc elteltével szűrtük a rendszer. Innen következett az 1 grammos optimális szilárd arányra.

A szorpció kinetikáját a vas(III)-bentonit esetében  $^{125}\text{I}$  és  $^{36}\text{Cl}$ -ionnal végeztük, melynél 1, 2, 3, 4, illetve 5 óránál vizsgáltuk a megkötődés mértékét.

## 4. Kísérleti eredmények és értékelésük

### 4.1. A szorpciós vizsgálatok eredménye

A 4.1.2. ábrán a a jodid- és kloridion vas(III)-bentoniton történő megkötődésének kinetikai ábráiból jól leolvasható, hogy a jodidion esetében az egyensúly 2-3 óra alatt beáll, viszont a kloridion esetén a megkötődés mértéke elhanyagolható. A jodidion megkötődését a Pourbaix-diagram alapján értelmezzük, mivel a minták potenciál értéke  $\sim 0,5$  V/SHE és pH-juk  $\sim 2,00$  (MOLNÁR 2014).

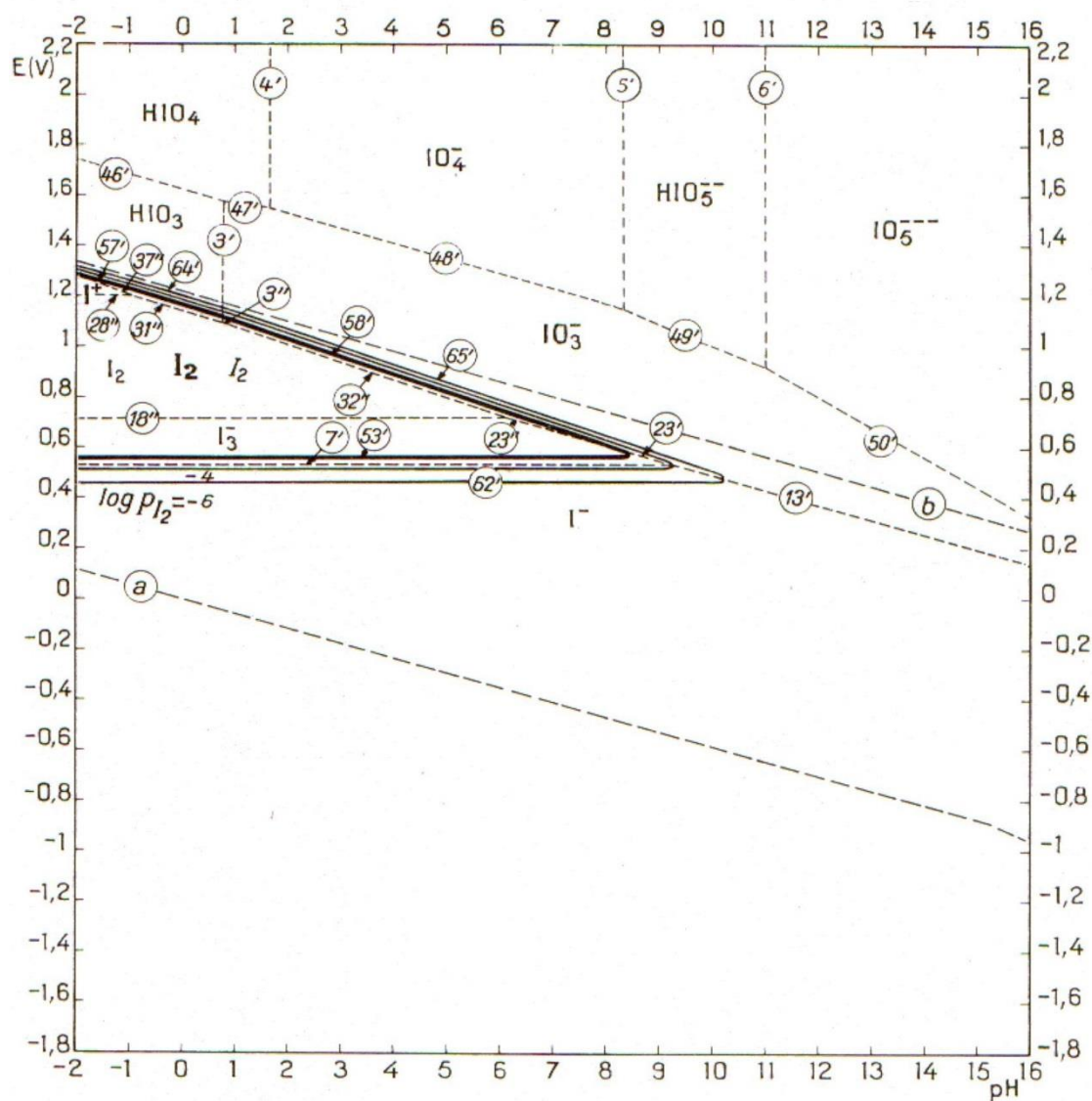
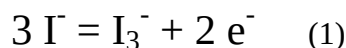


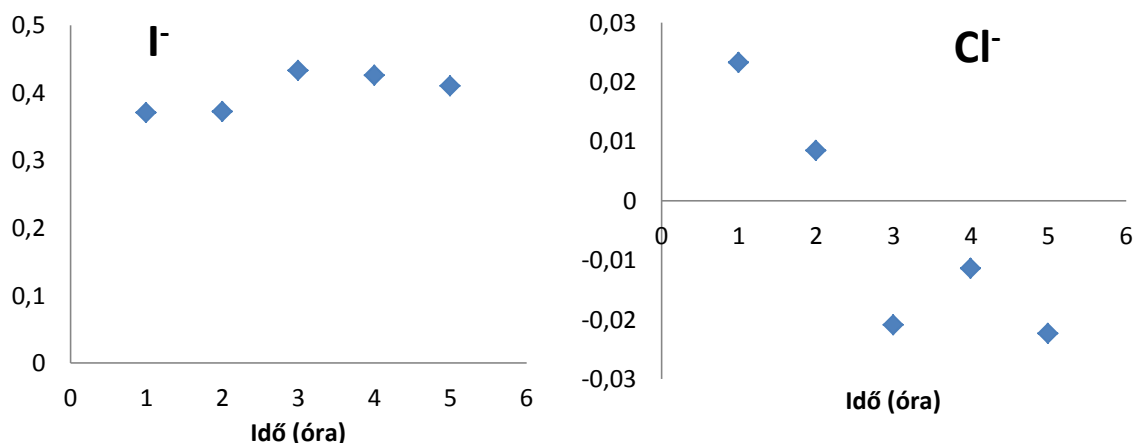
FIG. 1. Potential-pH equilibrium diagram for the system iodine-water, at 25°C, for solutions containing 1 g-at I/l.

4.1.1. ábra: A Pourbaix-diagram ábrája, potenciál függés V/SHE a pH függvényében  
(FRANKLIN 1966)

A kis pH azzal magyarázható, hogy a rétegek közötti térben víz található, melyben a  $\text{FeCl}_3$  hidrolízist szenved és proton szabadul fel. A Pourbaix-diagram azt mutatja, hogy ilyen körülmények között a jodidion átalakul trijodid ionná, mely könnyebben szorbeálódik:



Az elektronokat a rétegek közötti térben lévő vas(III) veheti fel.



**4.1.2. ábra: Jodid-, kloridion kinetikai mérés ábrája; x (arányossági tényező) érték az idő függvényében**

#### 4.2. A látszólagos migrációs együttható meghatározásának elve

Az akceptor cella aktivitásának növekedését az idő függvényében, illetve a szeletelt minták aktivitásának változását a hely függvényében Fick II. törvényének cellánkra alkalmazott megoldásával értékeltem (CRANK 1977):

$$C_{(x,t)} = C_0 \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{(D_m t)}} \quad (4) \text{ , ahol- } \operatorname{erfc} Z = 1 - \operatorname{erf} z; Z = \frac{x}{2\sqrt{(D_m t)}} \quad (5)$$

A látszólagos migrációs együttható ( $D_m$ ) összetett paraméter, mely különböző tényezőktől függ (porozitás, az ionnak a vízben mért diffúziós együtthatója, szorpciós folyamatok). (KOZAKI et al. 1998; TOURNASSAT et al. 2011)

A látszólagos migrációs együtthatót ( $D_m$ ) meg lehet határozni a  $C_{(x,t)}$ -t függvényből, ha  $x$  = állandó. Az akceptor cellából vett minták radioaktív intenzitása ( $I_{(x,t)}$ ) arányos a koncentrációval:

$$I_{(x,t)} = k\lambda V N_A C_{(x,t)} \quad (6)$$

ahol  $k$  a mérési hatások,  $\lambda$  a bomlási állandója az izotópnek,  $V$  a térfogata a mintaoldatnak,  $N_A$  az Avogadro-szám, a  $C_{(x,t)}$  a koncentrációja az ionoknak.

Az (4) és az (5) egyenlet helyett, összevonva használjuk az alábbi összefüggést:

$$I_{(x,t)} = I_0 \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{(D_m t)}} \quad (7)$$

A szeletelt minták esetén ugyanezt a függvényt használom, ilyenkor azonban a  $t$ =állandó. Az eredményeket a „Scientis” nevezetű programmal értékeltem.

#### 4.3. A mintavételes és szeleteléses módszerek összehasonlítása

A 4.3.1. táblázatban feltüntettem a mintavételes és a szeleteléses módszer által kapott migrációs együtthatókat, mind a kettő általam vizsgált ion esetén, valamint összehasonlításként a természetes Ca-bentonitban és a vas(III)-bentonitban meghatározott migrációs együtthatókat. (MOLNÁR 2014)

**4.3.1. táblázat: Klorid-, jodid- és céziumionok migrációs együtthatói  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Y}^{3+}$  és  $\text{Yb}^{3+}$ -bentonitban**

| Ion               |                     | Bentonit         |                 |                  |                  |
|-------------------|---------------------|------------------|-----------------|------------------|------------------|
|                   |                     | $\text{Fe}^{3+}$ | $\text{Y}^{3+}$ | $\text{Yb}^{3+}$ | $\text{Ca}^{2+}$ |
| $^{36}\text{Cl}$  | Mintavételes mdsz.  | 4,38E-12         | 4,85E-12        | 4,31E-13         |                  |
|                   | Mintavételes hibája | ±3,2E-13         | ±4,3E-13        | ±4,35E-13        |                  |
|                   | Szeleteléses mdsz.  | 4,26E-12         |                 |                  | 3,18E-12         |
|                   | Szeleteléses hibája |                  |                 |                  |                  |
| $^{131}\text{I}$  | Mintavételes mdsz.  | 5,55E-12         |                 |                  |                  |
|                   | Mintavételes hibája | ±4,49E-13        |                 |                  |                  |
|                   | Szeleteléses mdsz.  | 4,95E-12         |                 |                  |                  |
|                   | Szeleteléses hibája | ±5,45E-13        |                 |                  |                  |
| $^{137}\text{Cs}$ | Mintavételes mdsz.  | 1,67E-12         |                 |                  |                  |
|                   | Mintavételes hibája | ±8,65E-14        |                 |                  |                  |
|                   | Szeleteléses mdsz.  | 9,72E-13         | 4,13E-13        | 4,63E-13         | 6,33E-13         |
|                   | Szeleteléses hibája | ±5,01E-13        | ±6,95E-14       | ±6,00E-14        |                  |

A táblázatban megadtam a mérések hibáit is. Az adatok összehasonlításából is kiderül, hogy a mintavételes és a szeleteléses módszer is alkalmazható a látszólagos migrációs együttható megállapítására. Láthatjuk azt is, hogy a Ca-bentonitnál a kloridion és a céziumion migrációs együtthatói között már számottevőbb a különbség. Ennek oka, hogy a céziumion bekerül a Ca-bentonit rétegek közti terébe és ez fékezi a migrációt

sebességét. A rétegek közötti térben lévő vas(III)-speciesszek miatt a céziumion nem kötődik meg számottevő mértékben, ezért a migrációja az anionokhoz hasonlóan, lényegében a szabad pórusokban történik.

## 5. Összefoglalás

Kísérleteim azt mutatják, hogy a mintavételes és a szeleteléses módszerrel kapott értékek igen jól egyeznek, ebből arra következtethetünk, hogy mindkét módszer jól alkalmazható a migrációs együttható meghatározására.

Háromértékű kationok cseréje a bentonit agyagközetek esetén sikeresen megvalósítható. A ritkaföldfémionok vizes oldatból bevihetők, A vas(III)-ionok hidrolízise miatt a vas(III)-bentonit előállítása acetonos közegből történt. Ez azonban nem akadályozza meg, hogy hidrolízis a rétegek közötti vízzel végbemenjen, melynek során vas-oxid-hidroxid réteg képződik. Különösen érdekes, hogy a hidrolízis során felszabaduló hidrogénionok a vas(III)-bentonit vizes szuszpenzió pH-ját kb. 2-re csökkentik, amely katalitikus szempontból lehet érdekes.

A vas(III)-bentonit a természetes kalcium-bentonitnál lényegesen nagyobb mértékben köti meg a jodid aniont, ami a jodid-trijodid átalakulással értelmezhető.

Migrációs tulajdonságait tekintve a kloridionok esetén valamennyi háromértékű ionnal cserélt bentonit a hibahatárokon belül azonosan viselkedik, vagyis a negatív rétegek közötti térből kizáródó anionok a szabad pórusokban mozognak. Különbség van viszont a céziumionok migrációjában. A vas(III)-bentonit esetén a rétegek közötti térben kialakuló vas-oxid-hidroxid akadályozza a céziumionok megkötődését, azok migrációjának sebessége így nagyobb, mint a ritkaföldfémionokkal cserélt bentonitban, ahol a szorpció jelentős maradhat. A céziumion migrációs együtthatója a ritkaföldfémionokkal cserélt bentonitban nagyon hasonló a természetes kalcium-bentonitban mért értékhez.

A radioaktív izotópok tárolása szempontjából ezeknek a tapasztalatoknak az a jelentősége, hogy nagy a vasion-tartalmú felszín alatti víz esetén a bentonitban is felléphet ez a jelenség, vagyis a kationok migrációsebessége felgyorsulhat, míg ritkaföldfémek esetén a migráció sebessége lelassul, tehát a kicserélődés még végbe mehet.

## 6. Summary

My experiments showed that in case of anions there are no significant differences between the migration coefficients in sampling and chopping method so both are good for the determination. Replacement of trivalent cations successfully achieved. Rare earth ions are exchanged from aqueous solution. Iron(III) ions are allowed from acetone solution because of the iron(III) ions hydrolysis. However, this does not prevent that hydrolysis proceed by the interlayer water which causing iron oxide hydroxide layer. Particularly interesting that hydrogen ions which are released by hydrolysis reduce the pH to 2 in the aqueous suspension of iron(III)-bentonite what is quite interesting in catalytic aspects.

Iron(III)-bentonite sorb iodide ion in a higher degree than natural calcium bentonite. This can be interpreted by iodide-triiodide transformation.

Considering the migration characteristics of chloride ions, each trivalent ion exchanged bentonites behave identically within the experimental errors, so the negative interlayer anions are excluded from the open pore space. There are some differences in the migration of cesium ions. Iron(III)-bentonite has an oxide hydroxide layer in the interlayer space, - what I just mentioned why- and this layer prevents cesium ions sorption which produces greater rate of migration than rare earth(III)- bentonites where the sorption remains significant. Cesium ion migration coefficient is similar to rare earth(III)-bentonite and also to natural-calcium-bentonite.

## 7. Irodalomjegyzék

Barótfi István: (2003) Környezettechnika, Mezőgazda Kiadó KFT., pp423-428; 490-497

Bergaya F, Theng BKG, Lagaly G (eds): (2008) Handbook of clay science, 3rd edn. Elsevier, Amsterdam

Crank J (1979) The mathematics of diffusion. Clarendon Press, pp.450 Oxford

Dr. Végh S.: (1967) Nemércek földtana, Tankönyvkiadó pp110-111: 119-121: 143-145

James A. Franklin, (1966) Atlas of electrochem. equilibria in aqueous solutions pp.621-622

Komlósi Andrea: Röntgenfluoreszcencia analízis, műszeres analitika gyakorlat, Debreceni Egyetem Izotóp laboratórium

Kónya J, M. Nagy N: (2012) Nuclear and radiochemistry; Elsevier insights; pp.202:206-207

Kónya J, Nemes Z, Komlósi A, M. Nagy N: (2006) Radioaktív izotópok migrációja és megkötődése magyarországi kőzetekben; Magyarország környezetgeokémiai állapota; MTA földtudományok osztálya pp.23-24

Kónya J: (1991) Agrokémia és talajtan; Határfelületi reakciók talaj, agyagásvány / vizes oldat rendszerekben

Kozaki T, Saito N, Fujishima A, Sato S, Ohashi H: (1998) J Contam Hydrol pp.35:67–75

Molera M, Eriksen T, Jansson M: (2003) Appl Clay Sci pp.23:69–76

Molnár Á. M., (2014) Ionok migrációja vas(III)-ionokkal módosított bentonitban, Szakdolgozat

Molnár Zs: (2007) Folyadékszintillációs spektrometria; BME

Nagy N.M., Kónya J.: (2009) Interfacial chemistry of rocks and soils. Taylor and Francis, Boca Raton

Nemecz E: (1973) Agyagásványok; Akadémiai Kiadó Budapest

Noémi M. Nagy<sup>1</sup>, Mária Földvári<sup>2</sup>, Péter Kovács-Pálffy<sup>2</sup>, József Kónya<sup>1</sup>, (2007) Preparation and structure of rare earth element (REE) bentonites Proceedings of Euroclay

Peyrovi, M. H., Mahdavi, V., Salehi, M. A., Mahmoodian, R: (2005) Oxidation of alcohols with tert-butylhydroperoxide catalyzed by Co(II) complexes immobilized between silicate layers of bentonite, Catalysis Communications, Vol.6, Iss.7, pp.476-479

Richards L A: (1957) Diagnosis and improvement of saline and alkaline. US dept. agr. handbook Vol. 60

Tournassat C, Appelo CAJ (2011) Geochim Cosmochim Acta pp.426 75:3698–3710

Van Olphen, H. (1977) *An Introduction to Clay Colloid Chemistry*, 2<sup>nd</sup> edition. New York: Wiley and Sons

Vértés A., S. Nagy, and K. Süveg, : (1998) *Nuclear Methods in Mineralogy and Geology*, New York: Plenum

WEB <http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/8/8b/Montmorillonit.svg>:  
(2014. 11. 19.)

Weiszburg T., Szűcs P., Szlávik L., Szabó I., Papp Z., Nováky B., Kuti L., Hartai É., Földessy J., Cserny T., (2008) Fejezetek a környezetföldtanból pp 19

## I. Függelék

### **Célkitűzés**

Laboratóriumi munkám célja, a halogenidionok ( $^{131}\text{I}$  és  $^{36}\text{Cl}$ ) és céziumion ( $^{137}\text{Cs}$ ) szorpciója és migrációja, az előállított háromértékű kationcserélt bentonit mintákon.

### **Tudományos módszerek és azok jelentősége a kutatásban**

A célkitűzés értelmében munkám három nagyobb részre osztható.

Első feladat a háromértékű kationcserélt bentonitok előállítása volt. Istenmezei kalcium-bentonitból és  $\text{FeCl}_3$  acetonos oldásából, hogy a  $\text{Fe}^{3+}$ -ionok a bentonit rétegtközi terében ne csapódjanak ki oxid-hidroxid réteg formájában, majd ezeknek elegyítésével készítettem el a vas(III)-bentonitot. A  $\text{RFF}^{3+}$ -bentonitok előállítása, vizes közegben történt, istenmezei kalcium-bentonit és ritkaföldfém-perklorát oldatok elegyítésével. A ritkaföldfémek geológiai indikátorok, de a kötés jellegük és erősségük nem teljesen ismert, ezért foglalkoztam velük.

Második feladat a. és b. részre osztva a következőket csináltam:

a.: Kroecker-izotermát készítettem, a megfelelő szilárd/oldat arány megfelelő megismeréséhez.

b.: A kroecker-izoterma segítségével meghatároztam, hogy mennyi bentonitot kell felhasználnom a szorpció kinetikai vizsgálatához, melyet vas(III)-bentoniton végeztem  $^{131}\text{I}$  és  $^{36}\text{Cl}$  izotópok segítségével. A halogenidionok egyensúlyi megkötődését vizsgáltam.

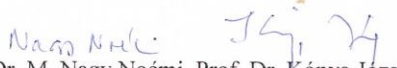
Harmadik feladat a migrációs kísérletek:

Migrációs kísérleteim,  $\text{Y}^{3+}$ - és  $\text{Yb}^{3+}$ -bentoniton végeztem  $^{36}\text{Cl}$  és  $^{137}\text{Cs}$  izotópokkal. A kísérleteket, a téma vezetőim által erre a kísérletsorozatra kifejlesztett cellában hajtottam végre, melynek fontos alapja Fick II. törvénye a diffúziós egyenlet. Ennek a kísérletsorozatnak a jelentősége az izotópok és a bentonitok közötti kapcsolat vizsgálata.

Debrecen, 2015. január 5.

  
Molnár Ákos Máté

Szerző

  
Prof. Dr. M. Nagy Noémi, Prof. Dr. Kónya József  
Témavezetők